Le contrôle cohérent de populations atomiques par des impulsions laser femtosecondes

Le contrôle cohérent a connu un développement considérable au cours de la dernière décennie. Tout d'abord gadget de théoriciens, les progrès technologiques récents ont permis aux expérimentateurs d'effectuer des démonstrations spectaculaires. Le but du contrôle cohérent est d'utiliser les propriétés de cohérence de la lumière pour contrôler le mécanisme d'interaction entre celle-ci et un système plus ou moins complexe (atomes, molécules). L'avènement des impulsions femtosecondes permet en particulier de développer des expériences de photochimie résolues en temps où la manipulation des caractéristiques spectrales de l'impulsion vont permettre de favoriser une voie de réaction photochimique. Pour étudier le rôle de ces paramètres, il est parfois plus simple de prendre des atomes comme système modèle afin de mieux comprendre toutes les caractéristiques de l'interaction. Dans cet article, nous expliquerons comment il est possible de modifier les paramètres de ces impulsions très courtes. Puis nous montrerons toute la richesse qu'apporte cette manipulation dans une analyse poussée de l'interaction entre la lumière façonnée et l'atome.

L'idée d'utiliser la lumière pour manipuler l'état interne d'atomes ou de molécules est assez ancienne. Dans les années cinquante, le pompage optique proposé par Alfred Kastler et Jean Brossel exploitait la combinaison d'excitations lumineuses par lumière polarisée pour préparer un atome dans un état interne bien défini. Ce concept a été à l'origine de l'obtention de l'effet laser au début des années soixante. Les propriétés de cohérence spatiale et temporelle des lasers ont ensuite été largement utilisées pour développer des techniques de plus en plus sophistiquées permettant de manipuler l'état interne des atomes. Le refroidissement et le piégeage d'atomes par laser qui permirent à Claude Cohen-Tannoudji de partager le prix Nobel de Physique en 1997 constituent un exemple spectaculaire d'application des techniques de manipulation d'états internes et externes d'atomes. La plupart de ces méthodes, développées à partir des années quatre-vingt, ont pu être mises en oeuvre avec des lasers continus ou à impulsions longues (nanoseconde). L'apparition des lasers picoseconde puis femtoseconde avec des intensités instantanées maximales de plus en plus élevées permet le développement d'une nouvelle science aux temps courts, aux applications nombreuses allant de la manipulation des états internes d'un atome à celle de la structure de macromolécules biologiques, en passant par l'étude de dynamique de molécules ou d'agrégats plus ou moins complexes… Les lasers femtoseconde se mettent au service de la femtochimie pour permettre d'étudier la dynamique aux temps courts de ces réactions. En effet, l'interaction d'une impulsion laser avec des molécules peut donner lieu à l'initiation d'une réaction chimique. Il est rapidement montré que les paramètres de l'impulsion peuvent favoriser certains chemins de réaction. En effet, il existe plusieurs façons de faire de la photochimie. La façon la plus simple est d'utiliser une lumière blanche incohérente. Le spectre de cette source est très large mais il n'existe pas de relation de phase entre les différentes longueurs d'onde. Admettons maintenant qu'on puisse générer un tel spectre mais avec une relation de phase bien définie entre les longueurs d'onde telle qu'elles arrivent en même temps. On crée alors un paquet d'onde, dont la distribution d'amplitude est le plus souvent une gaussienne. On a ainsi généré une impulsion courte appelée impulsion limitée par

Article proposé par :

Béatrice Chatel, beatrice@irsamc.ups-tlse.fr, Laboratoire collisions, agrégats, réactivité, CNRS/Université Toulouse 3.

Ont également participé à ce travail A. Monmayrant, J. Degert, S. Stock, S. Zamith, B. Girard, V. Blanchet, M.A. Bouchène, (LCAR, UMR 5589, Toulouse) et W. Wohlleben, M. Motzkus, (MPQ, Garching).

transformée de Fourier. D'un point de vue mathématique, on considère que la phase spectrale du champ électrique est constante. Plus le spectre de l'impulsion est large, plus l'impulsion est courte selon les relations de Fourier. La distribution d'amplitude et de phase spectrales du paquet d'onde peut être modifiée (cf. encadré 1) donnant à l'expérimentateur un nombre de degré de liberté très important. Ces modifications spectrales donnent des formes temporelles très complexes dont le support sera toujours plus long que l'impulsion de même spectre limitée par transformée de Fourier. Dans un système moléculaire où il existe de nombreux niveaux d'énergie (rotationnelle, vibrationnelle, électronique), les différents chemins quantiques possibles seront plus ou moins favoriser en fonction de cette distribution en phase et en amplitude.

En particulier, à partir de 1992, la proposition de H. Rabitz « Teaching laser to control molecules » affirme qu'il n'est plus nécessaire de savoir modéliser le système et l'interaction pour guider la réaction dans le sens souhaité. Ainsi le contrôle cohérent qui consistait à utiliser les interférences entre différents chemins quantiques pour contrôler l'évolution d'un système glisse vers une de ses variantes le « contrôle optimal » : lors d'une interaction entre un système complexe et le champ laser, il suffit de définir le signal à optimiser et de se donner le moyen de le mesurer. En appliquant alors une boucle rétroactive entre ce signal et la mise en forme de l'impulsion, on cherche à l'optimiser, sans pour autant connaître le mécanisme de l'interaction et /ou le système dans leur détail. Pour ce faire, on utilise le plus souvent un algorithme d'évolution dont il existe de nombreuses variantes que nous ne détaillerons pas ici. La première démonstration expérimentale de ce contrôle optimal a lieu en 1998 dans l'équipe de G. Gerber à Wurzburg. Celle-ci montre alors que dans une dissociation induite par laser d'un complexe fer-carbonyle, il est possible de maximiser le rapport des fragments, forçant ainsi une voie de la réaction chimique. Un tel résultat révolutionne le monde de la femtochimie et ouvre la voie vers toutes sortes d'optimisation : choix d'une voie de dissociation, maximisation d'un rapport de fragment dans une réaction chimique, ou d'un transfert de population, réduction du photoblanchiement si gênant dans les expériences d'imagerie de système biologique…

Cependant pour celui qui veut comprendre le mécanisme de l'interaction, cette technique de boucle rétroactive aveugle explore de façon presque « aléatoire » l'espace des paramètres et il est bien difficile d'en tirer une information sur le système. Se développent alors, en parallèle, des techniques dites de boucle ouverte, où l'algorithme est remplacé par la modélisation de l'interaction. Le prix à payer est la simplification du système pour être capable de simuler l'interaction. On peut alors déterminer quel façonnage de l'impulsion sera optimal pour conduire le système dans l'état désiré. C'est l'approche de notre groupe à Toulouse, dictée par un désir de comprendre certains phénomènes observés dans l'étude de dynamique de systèmes plus complexes. Ainsi les atomes sont choisis comme systèmes modèles pour pousser le contrôle dans ses retranchements. Dans cet article, on s'attachera à montrer comment se comporte un système simple (atome à deux niveaux) soumis à une impulsion courte puis à une impulsion façonnée à partir de cette impulsion femtoseconde d'origine.

Plantons le décor : ici un système quantique le plus simple qui soit : le système à deux niveaux. Là, une impulsion lumineuse ultracourte (100 fs) qui interagira avec le système et le portera dans un état excité. Le but de l'expérience est de regarder l'évolution temporelle de la population de cet état pendant l'impulsion ou après. Ce film va se dérouler sous nos yeux grâce à l'utilisation de la technique pompe-sonde. La pompe, c'est l'impulsion mentionnée ci-dessus qui initie la dynamique. La sonde, c'est une impulsion plus courte qui, comme un flash en stroboscopie, nous donnera des instantanés, emportant le système dans un état d'où il se désexcitera par fluorescence. Ainsi nous accéderons à l'évolution temporelle de la population des atomes dans l'état excité. Dans une transition à un photon, la population de l'état excité s'écrit simplement : $|a_e(t)|^2 \propto \int_0^t E(t')dt'$ où E est le champ laser d'excitation. La population transitoire des atomes dans l'état excité est donc sensible à toute modification du champ laser (façonnage cf. encadré 1).

Transitoires cohérents dans un atome

Maintenant que le décor et les personnages sont posés, revenons à quelques considérations physiques au sujet de l'interaction. Considérons l'interaction du système à deux niveaux avec une impulsion limitée par transformée de Fourier (toutes les fréquences de l'impulsion arrivent en même temps dans l'impulsion).

Dans le cas d'une impulsion hors résonance, c'est-à-dire où l'écart à résonance est grand devant la largeur spectrale du laser, une population instantanée des atomes dans l'état excité sera induite pendant le temps que dure l'impulsion. En effet, l'idée communément admise qu'on ne peut effectuer une transition entre deux niveaux que lorsque l'énergie du photon apportée par le laser est égale à celle de la transition n'est pas exacte, dans le cadre du régime dépendant du temps.

En fait, on peut dire de façon imagée, que l'atome reste dans l'état excité un temps inversement proportionnel à l'écart à résonance. On voit donc que dans le cadre d'une impulsion dite hors résonance, la population de l'état excité suit adiabatiquement l'évolution temporelle du champ laser d'excitation. A la fin de l'impulsion, la population des atomes dans l'état excité est donc nulle.

Par contre, si maintenant on considère le cas où la résonance est comprise dans le spectre de l'impulsion, alors une population à l'instant $t = 0$ est créée avec un temps de montée qui dépend de la durée de l'impulsion. Cette population des atomes dans l'état excité dure (au-delà de l'impulsion), un temps égal à la durée de vie du niveau considéré. Dans la

Encadré 1

Impulsions ultracourtes façonnées : mode d'emploi

Les impulsions dont on parle ici, quelques dizaines de fs sont « vraiment très courtes ». Dans l'enveloppe d'une impulsion laser centrée à 800 nm d'une durée de 30 fs, le champ électrique oscille une dizaine de fois à une période optique de 2.7 fs. Aussi même les meilleurs détecteurs ne sont pas capables de mesurer un temps si court. On ne peut donc pas faire de mesure directe de leur durée ; on ne peut pas non plus modifier leur forme directement en temps réel. L'interrupteur ou le synthétiseur femtoseconde ne sont pas encore d'actualité !
Une impulsion femtoseconde comprend un ensemble de composantes spectrales qui ont une relation de phase bien définie entre elles. L'espace temporel et fréquentiel (spectral) étant des espaces réciproques, les critères de Fourier disent que plus l'impulsion est courte plus son spectre est large. Par exemple, une impulsion d'une durée de 100 fs à 800 nm a un spectre de 10 nm de large (les largeurs sont données à mi-hauteur en intensité temporelle et spectrale). Si on est capable d'agir sur les composantes spectrales de façon individuelle, on peut alors modifier l'impulsion dans le domaine temporel (comme par exemple étirer l'impulsion).

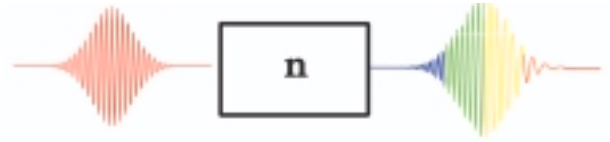

Figure 1 - *Représentation d'une impulsion limitée par transformée de Fourier qui traverse un milieu d'indice n. A la sortie l'impulsion est dite à dérive de fréquence.*

Prenons une impulsion dite limitée par transformée de Fourier : toutes les composantes spectrales de l'impulsion sont présentes en même temps dans l'impulsion (ce qui revient à dire que la phase des différentes composantes spectrales est une constante). Laissons cette impulsion se propager dans un matériau comme du verre. Chacun sait que l'indice du verre dépend de la longueur d'onde (ou fréquence). Les courtes longueurs d'onde se propagent plus lentement que les grandes. Ainsi la partie la plus rouge de l'impulsion va se retrouver devant et la partie la plus bleue de l'impulsion derrière. Ce façonnage extrêmement simple est encore très souvent utilisé pour étirer l'impulsion (figure 1). On appelle une telle impulsion, une impulsion à dérive de fréquence. On peut montrer que l'expression d'une telle impulsion dans le domaine spectral est un terme quadratique dans le développement de la phase, communément noté ϕ''. Dans le cas de façonnage plus complexe, il existe d'autres techniques. La figure 2 montre la plus répandue : il s'agit de construire un plan de l'espace dans lequel toutes les composantes spectrales de l'impulsion sont spatialement séparées et focalisées, c'est-à-dire un plan de Fourier pour l'impulsion temporelle. En plaçant un masque en phase et/ou en amplitude dans ce plan, on peut alors moduler la phase et l'amplitude de chaque composante spectrale.

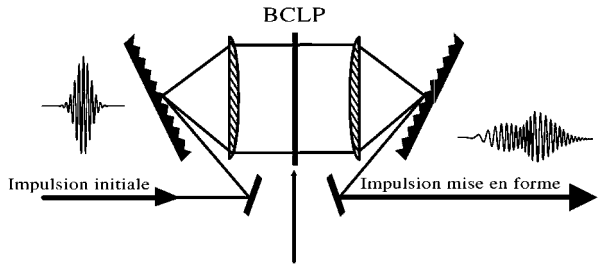

Figure 2 - *Schéma d'un dispositif de mise en forme d'impulsions ; BCLP : Barrette de cristaux liquides programmables.*

Pour cela, on utilise un réseau pour disperser l'impulsion, un dispositif à cristaux liquides programmables qui permet de créer le masque complexe en introduisant des déphasages ou atténuations (en utilisant alors conjointement des polariseurs) et un second réseau pour recomprimer l'impulsion. On peut alors façonner l'impulsion dans le domaine spectral comme on le souhaite. Il suffit de faire une transformée de Fourier complexe du champ laser spectral, pour avoir l'expression du champ laser temporel que l'on a créé. Pour donner une idée de ce que cela représente, une photo de notre montage expérimental est montrée ici. Par le choix des divers éléments optiques du montage, Ce dispositif permet d'avoir une excellente résolution dans le domaine spectrale. Il permet de réaliser un façonnage de l'impulsion sur une fenêtre de 40 ps à la fois en amplitude et en phase. Cela veut dire qu'à partir d'une impulsion de 100 fs qui passe dans ce dispositif on peut générer exactement la forme d'impulsions que l'on souhaite (train d'impulsions, impulsions de forme temporelle carrée, impulsion étirée…) exactement comme un synthétiseur.

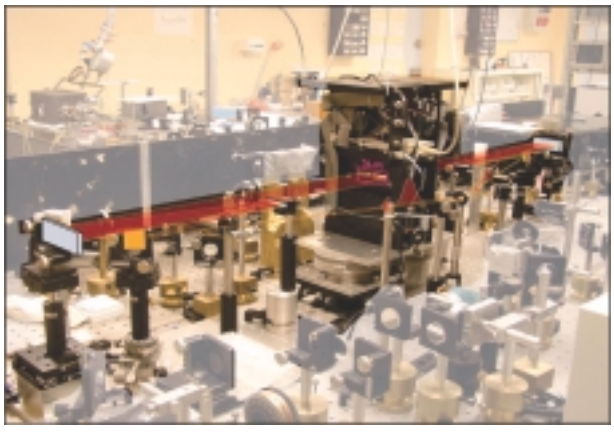

Figure 3 - *Photo du dispositif de mise en forme d'impulsions réalisée à Toulouse. Pour avoir une excellente résolution, on a choisit des dispositifs à cristaux liquides avec 640 pixels qui ont une largeur de 100 µm chacun. La distance entre les deux miroirs extérieurs est de 140 cm.*

plupart des cas atomiques, celle-ci est de quelques nanosecondes : l'infini aux échelles de temps qui nous intéressent (quelques 100 fs) ! Par conséquent, la valeur asymptotique de la population ne dépend ici que de l'énergie à la résonance dans l'impulsion.

Maintenant considérons une impulsion dite à dérive de fréquence où les fréquences de l'impulsion arrivent à des instants successifs (cf. encadré 1). L'interaction avec le système à deux-niveaux sera un mélange des deux interactions précédemment décrites. En effet, une façon quelque peu imagée de voir cette impulsion à dérive de fréquence est de la considérer comme une succession d'impulsions (à spectre étroit) avec une fréquence centrale bien définie qui se décale progressivement au cours du temps et, avec une relation de phase parfaitement connue. Ainsi les atomes « voient » successivement dans le temps un champ hors résonance puis à résonance puis de nouveau hors résonance. Mais toutes ces contributions sont cohérentes entre elles et peuvent donc interférer. Si on regarde l'évolution de la population des atomes dans l'état excité au cours du temps, ce sont ces interférences que l'on va observer. Ces oscillations, que nous nommerons par la suite « transitoires cohérents », ont été mises en évidence pour la première fois dans les années 50 en RMN.

La figure 1 a été obtenue dans une expérience réalisée dans la vapeur de rubidium, la transition $5s - 5p$ servant de système à deux-niveaux. Une impulsion pompe à 795 nm excite le système (c'est une impulsion à dérive de fréquence d'une durée de 20 ps, obtenue par façonnage d'une impulsion limitée par transformée de Fourier de 100 fs), la sonde visible d'une durée de 20 fs (qui donne la résolution temporelle) porte le système dans l'état 8s d'où il se désexcite par fluorescence. On mesure celle-ci (figure 1) en fonction du délai entre la pompe et la sonde, grâce à un photomultiplicateur. Le flanc de montée des transitoires cohérents correspond au moment où l'impulsion pompe passe par la résonance, là la population des atomes dans l'état excité augmente brutalement, ensuite cette population va interférer avec toutes les contributions hors résonance qui sont situées après le temps correspondant au passage par résonance dans l'impulsion. Les oscillations sont clairement visibles. Elles s'ajustent parfaitement avec la courbe théorique (résolution de l'équation de Schrödinger en vert).

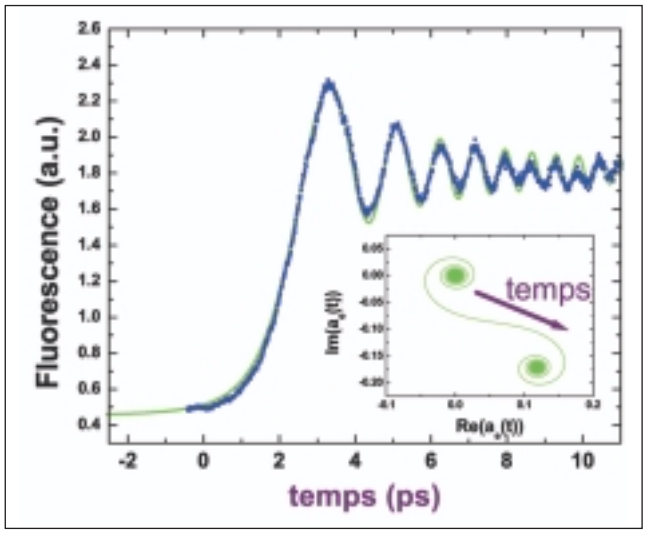

Figure 1 - *Transitoires cohérents dans le rubidium (en bleu l'expérience, en vert la théorie). En insert, tracé de l'évolution temporelle de l'amplitude de population dans le plan complexe.*

L'évolution temporelle des transitoires cohérents peut aussi s'analyser en traçant l'amplitude de probabilité (a_e) des atomes dans l'état excité. Cette amplitude est simplement l'intégrale du champ d'excitation et est complexe (cf. insertion figure 1). On obtient alors une magnifique spirale similaire à la spirale de Cornu de la diffraction de Fresnel. Rappelons que la spirale de Cornu représente dans le plan complexe, le champ lumineux d'un faisceau gaussien diffracté par un bord d'écran pour différentes valeurs de la position du bord d'écran dans le champ. Ici la résonance atomique joue le rôle de bord d'écran. Le temps est l'équivalent de la position.

Réalisation d'une lentille de Fresnel temporelle

L'observation de ces transitoires cohérents amène à penser qu'une partie de l'impulsion contribue à augmenter la population tandis que d'autres contribuent à la diminuer. Est-il possible de contrôler l'impulsion de manière à « focaliser » l'amplitude de probabilité et ne garder que les parties qui contribuent constructivement à la population. La réponse à cette question se trouve en poussant l'analogie avec la diffraction dans l'analyse des lentilles dites de Fresnel-Bragg.

Avant de regarder comment mettre à profit l'analogie avec la diffraction pour augmenter le transfert de population, faisons un bref rappel historique concernant les lentilles dites de Fresnel. Si les lentilles dites à échelon, proposées par Fresnel en 1822, sont bien connues du grand public pour leurs utilisations dans les projecteurs et les phares, les lentilles de Fresnel-Bragg basées sur les interférences optiques le sont moins et pourtant dans certains domaines de la physique (optique pour les rayons X) elles sont très utilisées.

Pour en expliquer le principe avec les mains, revenons d'abord au principe d'Huyghens-Fresnel, qui régit la propagation de la lumière. Ce dernier stipule que la lumière se propage de proche en proche. Chaque point M d'une surface atteinte par la lumière se comporte comme une source secondaire émettant des ondelettes sphériques dont l'amplitude est proportionnelle à celle de l'onde incidente. Les vibrations issues des différentes sources secondaires interfèrent entre elles pour former la vibration lumineuse en un point P donné. Ainsi les contributions de certaines zones en inter-

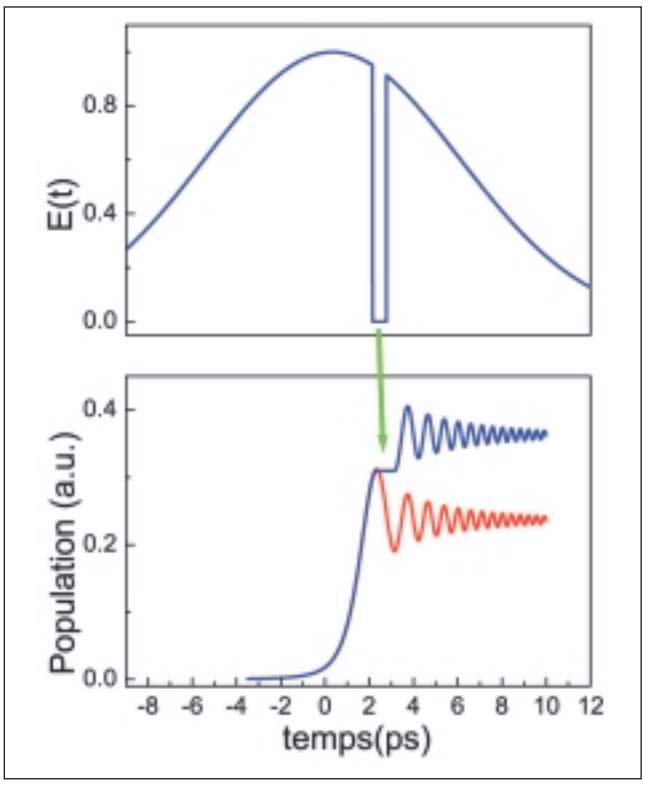

Figure 2 - *Simulation d'une lentille de Fresnel dans le domaine temporel (en bleu). Les transitoires cohérents en rouge sont montrés comme référence. En haut, est représentée l'impulsion dans le domaine temporel. Le trou temporel dans le champ électrique permet d'éliminer la partie destructive des interférences, conduisant à la courbe bleue.*

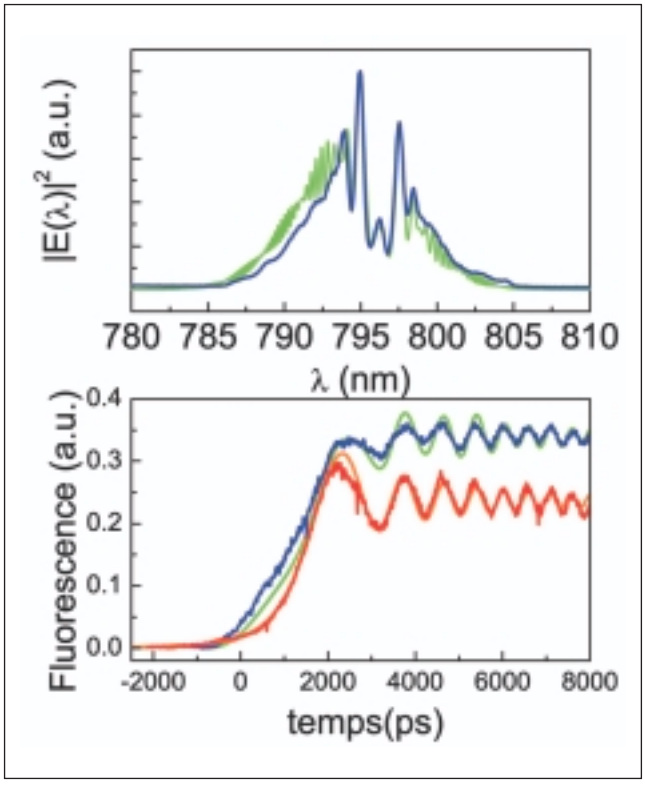

Figure 3 - *En haut : spectre expérimental (bleu) et théorique (vert). En bas : réalisation expérimentale de la lentille de Fresnel temporelle (en bleu). Transitoires cohérents originaux en rouge ; la théorie est en vert et orange.*

férant se détruisent en partie. On augmente donc considérablement l'intensité au point P, si l'on supprime certaines contributions en plaçant un masque sur le trajet de l'onde. Un tel masque s'appelle un réseau zoné ou lentille de Fresnel car il permet la focalisation de l'onde incidente au point *P*.

Ce que nous venons de dire pour la propagation libre d'une onde sphérique est encore valable si l'on considère la diffraction d'un faisceau gaussien par un bord d'écran. Ainsi, en introduisant un réseau zoné dans le plan de l'objet diffractant, on peut accroître l'intensité du faisceau diffracté en un point du plan d'observation. En transposant ce que nous venons de dire au domaine temporel, on voit qu'il est possible d'augmenter la probabilité d'être dans l'état excité en créant l'analogue d'un réseau zoné pour l'impulsion pompe. Pour cela on découpe son profil temporel afin de ne laisser voir à l'atome que les parties du champ électrique contribuant de manière constructive à la probabilité d'excitation et d'avoir, ainsi, un transfert de population plus grand. Suivant l'adage « qui va piano, va sano », nous choisissons dans un premier temps, d'en faire la démonstration en découpant une seule zone. La figure 2 reprend les transitoires cohérents initiaux (en rouge) et montre l'effet de cette première zone de Fresnel (transitoires manipulés en bleu).

Rappelons qu'à l'échelle de la femtoseconde, il est naturellement inenvisageable de créer un obturateur capable de s'éteindre et de se rallumer sur un temps si bref. Mais, par contre, en se plaçant dans le domaine spectral, on peut façonner en phase et en amplitude le spectre $|E(\omega)|^2$ (figure 3 en haut-courbe verte) tel que $E(t)$ soit comme sur la figure 2 en haut (courbe bleue). Cette mise en forme spectrale a été réalisée à l'aide d'un dispositif décrit dans l'encadré 1. La figure 3 montre le spectre expérimental obtenu (en bleu) et les transitoires cohérents manipulés (en bleu). Les courbes en trait plein représentent les résultats prédits par la résolution de l'équation de Schrödinger.

Cette expérience a été réalisée à Toulouse en collaboration avec une équipe du Max Planck (Garching). La première réalisation de lentille de Fresnel temporelle a ainsi été obtenue en poussant le façonnage d'impulsions dans ses retranchements (complexité de l'amplitude et de la phase de l'impulsion requise). En théorie, il était possible de « monter plusieurs marches » et par là d'éliminer toutes les contributions destructives afin de maximiser le signal, mais la résolution pourtant déjà élevée du dispositif de façonnage d'impulsions a limité cette possibilité.

Le spirographe atomique ou la mesure de la fonction d'onde

En partant d'une idée de contrôle de la population de l'état excité qui demande une grande maîtrise de l'impulsion laser utilisée, on s'aperçoit qu'on peut aussi utiliser ce schéma de contrôle pour obtenir des informations sur la fonction d'onde associée à l'état excité de l'atome (ou dit autrement de l'amplitude de probabilité des atomes dans l'état excité), comme nous allons le montrer dans ce dernier paragraphe.

La plupart des mesures faites sur des systèmes microscopiques ne permet d'accéder qu'aux probabilités (ou populations). Ainsi la phase de la fonction d'onde est une grandeur difficilement accessible qui joue pourtant un rôle crucial pour tout ce qui touche au fondement de la mécanique quantique et à son application à des domaines comme le traitement quantique de l'information. L'observation des transitoires cohérents ne déroge pas à la règle et c'est bien une probabilité d'avoir des atomes dans l'état excité que l'on mesure. Mais en affinant notre schéma de contrôle nous avons cherché à obtenir une mesure qui nous permette de reconstruire expérimentalement cette spirale qui donne accès à l'amplitude de probabilité et par là à la fonction d'onde de l'état excité. Deux remarques préalables sont nécessaires : la première est que pour avoir la partie réelle et imaginaire de cette amplitude il faudra nécessairement faire deux mesures « en quadrature » des transitoires cohérents. La seconde remarque est que telle qu'elle, notre expérience n'est sensible qu'à la fonction d'onde après le passage par la résonance (là où les interférences ont lieu). Il faut donc trouver une astuce pour obtenir des interférences avant et après le passage par la résonance. Il suffit pour cela que les atomes aient « vu » avant l'impulsion à dérive de fréquence une impulsion limitée par transformée de Fourier qui permet de transférer un peu de population dans l'état excité.

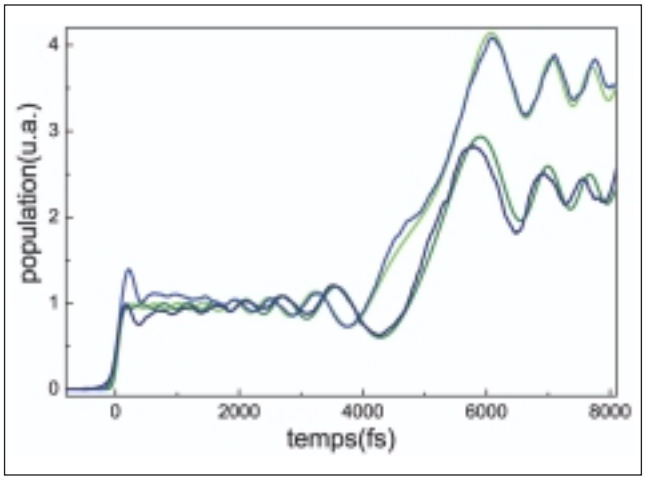

Figure 4 - *Transitoires cohérents obtenus avec une paire d'impulsions (deux enregistrements pris pour des phases entre les impulsions en quadrature) : la première impulsion est limitée par transformée de Fourier, la seconde est à dérive de fréquence. Les oscillations avant et après la résonance sont clairement visibles. En bleu l'expérience ; en vert, la théorie.*

Pour ce faire, on choisit donc de faire interagir le système avec un train de deux impulsions qui sera façonné à l'aide du dispositif de mise en forme d'impulsions. Une première impulsion laser à résonance et limitée par transformée de Fourier transfère un peu de population dans l'état excité. Cette population correspond à la première marche de la figure 4 au temps $t = 0$. Puis la seconde impulsion à dérive de fréquence arrive avec un délai et une phase bien déterminée. Comme dans les expériences précédentes, c'est elle qui crée les transitoires cohérents. Mais maintenant l'ensemble du spectre (hors résonance) peut interférer avec la population créée à résonance par la première impulsion.

Comme le montre la figure 4, on obtient donc des oscillations avant et après le temps correspondant au passage par la résonance de la deuxième impulsion. La population finale des atomes dans l'état excité, elle, est plus ou moins importante suivant la phase choisie entre les deux impulsions. Si maintenant, on réalise deux mesures en quadrature soit un enregistrement de deux transitoires cohérents avec une phase entre les deux impulsions successivement de 0 ou $\pi/2$ (figure 4), on peut, par combinaison linéaire des deux, remonter aux parties réelle et imaginaire de l'amplitude de population, et reconstruire de façon intégrale la spirale expérimentale due à la seconde impulsion (figure 5). On a ainsi réalisé « un spirographe atomique… »

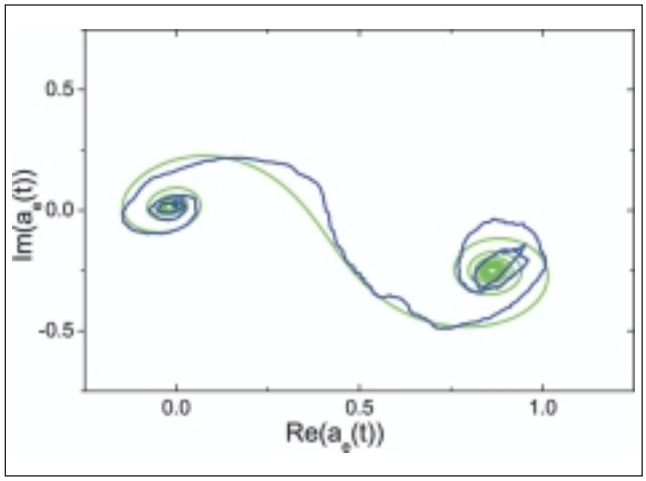

Figure 5 - *Spirale théorique (verte) et expérimentale (bleue) : reconstruction de la fonction d'onde à partir des transitoires de la figure 4.*

Mis à part l'esthétisme certain de ce genre de figure, il est intéressant de voir que cette spirale expérimentale donne accès à une mesure directe de la fonction d'onde de l'état excité et non à sa population.

En conclusion, on a montré que le système à deux niveaux n'a pas fini d'être revisité. Les méthodes de façonnage d'impulsions y trouvent là un système modèle de choix permettant de complexifier autant que possible les schémas d'interaction, poussant le contrôle toujours plus loin.

Le développement des techniques de façonnage alliées à une versatilité toujours plus grande des sources femtose-

condes en terme de longueurs d'onde (des THz aux rayons X), de durée (des picosecondes aux attosecondes ($10^{-18}s$)), d'énergie (du *nJ* au *MJ*) repousse plus loin encore les limites d'exploration des interactions lumière-matière. Ainsi va-t-on pouvoir sonder les dynamiques les plus internes de la matière. Cette exploration de la matière va des systèmes atomiques les plus simples où les phénomènes d'interaction sont étudiés jusque dans leur tréfonds, aux systèmes les plus complexes comme les macromolécules d'intérêt biologique. Grâce aux intensités instantanées extrêmement élevées, il est possible de générer des impulsions X courtes qui peuvent être utilisées pour sonder la matière par diffraction X et observer par reconstruction l'évolution de macromolécule comme l'hémoglobine. Nous sommes à la porte du contrôle de réaction photochimique mettant en jeu des molécules biologiques. Ainsi du plus simple au plus complexe, les femtosecondes alliés au dispositif de façonnage d'impulsions trouvent jour après jour de plus en plus d'application que ce soit sur des atomes, des molécules, des quantum dots, des systèmes biologiques ou des nanoparticules. La jeunesse de cette physique qui ne cesse de progresser par l'amélioration des techniques nous promet autant de perspectives enthousiasmantes pour le futur….

Pour en savoir plus

Degert (J.), Wohlleben (W.) *et al*, « PRL », **89**, 2002, 203003.

Chatel (B.), Girard (B.), « Femtosecond laser spectroscopy », *Hannaford-Kluwer*, 2004.

Mestdagh (J.M.), Girard (B.), « Science aux temps courts. De l'attoseconde aux pétawatts », A.d. Sciences (*Tec. et doc.)*, Paris 2000.